

10/509425  
Rec'd PCT/PTO 24 SEP 2004  
PCT/JP 03/03665

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

25.03.03

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日  
Date of Application:

2002年 3月26日

出 願 番 号  
Application Number:

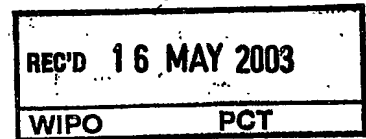
特願2002-086649

[ ST.10/C ]:

[ JP 2002-086649 ]

出 願 人  
Applicant(s):

科学技術振興事業団

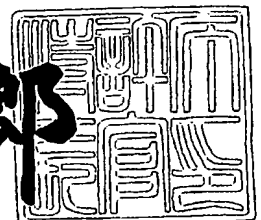


PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2003年 5月 2日

特 許 庁 長 官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

太田信一郎



BEST AVAILABLE COPY

出証番号 出証特2003-3031317

【書類名】 特許願  
 【整理番号】 Y13-P531  
 【提出日】 平成14年 3月26日  
 【あて先】 特許庁長官殿  
 【国際特許分類】 C30B 29/28  
 G01T 1/202  
 C09K 11/00

【発明者】

【住所又は居所】 宮城県仙台市泉区虹の丘 2 - 6 - 7

【氏名】 福田 承生

【発明者】

【住所又は居所】 宮城県仙台市太白区三神峯 1 - 3 - 2 - 2 0 3

【氏名】 吉川 彰

【発明者】

【住所又は居所】 東京都調布市上石原 1 - 4 8 - 1 3 コーポ円佳 1 0 1

【氏名】 津崎 卓司

【特許出願人】

【識別番号】 396020800

【氏名又は名称】 科学技術振興事業団

【代理人】

【識別番号】 100108671

【弁理士】

【氏名又は名称】 西 義之

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 048541

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】	要約書	1
【プルーフの要否】	要	

【書類名】 明細書

【発明の名称】 Yb 混晶酸化物単結晶からなるシンチレータ用発光材料

【特許請求の範囲】

【請求項1】  $R_3Al_5O_{12}$ ,  $R_3Ga_5O_{12}$ , または  $Li_6R(BO_3)_3$  の組成 (R は、Yb と Y, Gd, Lu のいずれかとの混合物) で表され、近接の陰イオン (酸素イオン) と CTS と呼ばれる光学的に活性な状態を形成する元素として Yb を含有する Yb 混晶酸化物単結晶からなるシンチレータ用発光材料。

【請求項2】  $La_3R_2Ga_3O_{12}$  または  $Gd_3R_2Ga_3O_{12}$  の組成 (R は、Yb と Y, Gd, Lu のいずれかとの混合物) で表され、近接の陰イオン (酸素イオン) と CTS と呼ばれる光学的に活性な状態を形成する元素として Yb を含有する Yb 混晶酸化物単結晶からなるシンチレータ用発光材料。

【請求項3】 前記 R における Y, Gd, Lu のいずれかと Yb とのモル比が下記の条件を満たすことを特徴とする請求項1または2に記載の発光材料。

1.  $0.4x + 1.02y \leq 1.03$ ,  $x + y = 1$ ,  $0 < x < 1$ ,  $0 < y < 1$  (但し、 $x$ : Yb のモル比,  $y$ : Y, Gd, Lu のいずれかのモル比)

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、ガーネット単結晶またはボレート単結晶を母結晶とする Yb 混晶酸化物単結晶からなるシンチレータ用発光材料に関する。

【0002】

【従来の技術】

これまで、シンチレータ用発光材料として使用されているものは、Ce:GSO、Ce:LSO、Ce:YAP、に代表されるように、Ce の 5d-4f 遷移を用いたものである。

特許文献には、Cr によって賦活化される Gd・Ga ガーネット、Gd・Sc・Ga ガーネット、Gd・Sc・Al ガーネット、ならびに Ce または Nd によって賦活化される Y・Al ガーネット (特開平4-289483号公報)、TB 含有ガーネット (特開平7-149599号公報、特開平10-1396号公報

）が開示されている。

#### 【0003】

##### 【発明が解決しようとする課題】

シンチレータ用発光材料としては、解決されなければならない主な課題として下記のような特性が挙げられる。

##### 【濃度消光】

シンチレータ用発光材料として使用されているCe:GSO、Ce:LSOは、発光元素であるCeが多量に含まれる方が発光量は増えるが、Ceの5d-4f遷移を用いたものは1at%を超えるとコンセントレーションクエンチング（濃度消光）が顕著となり、シンチレータ効果を示さなくなってしまう。

##### 【偏析】

更に、Ceは希土類イオンの中でもLaに次いで大きく、母結晶における代表的な希土類イオン（Y, Gd, Lu）と比して大きすぎるため、偏析係数が極めて小さくなってしまう。その結果、Ceの濃度が単結晶の作製方向に従って変動する。このために物性値が変化してしまうことも高精度化PET（ポジトロン断層技術）等に使用する際に大きな問題となっている。

##### 【発光波長】

また、発光波長が370nmと短波長であるため、検出器として光電子増倍管を用いる必要があり、光電子増倍管より30～40倍も分解能が高い半導体フォトダイオードが使えないという技術的限界がある。

#### 【0004】

##### 【課題を解決するための手段】

本発明者らは、Ybを混晶成分としたガーネットあるいはボレートでは、Yb（イッテルビウム）とO（酸素）間の電荷移動状態（CTS）から遷移によるシンチレータ光が発生でき、濃度消光もYb濃度4.0at%以下では顕著でないため輝度を高められること、室温での消光時間が短いこと、半導体フォトダイオードの感度範囲の波長であること、から高精度シンチレータとして有効な単結晶であることを見出した。

#### 【0005】

すなわち、本発明は、 $R_3Al_5O_{12}$ 、 $R_3Ga_5O_{12}$ 、または $Li_6R(BO_3)_3$ の組成（Rは、YbとY、Gd、Luのいずれかとの混合物）で表され、近接の陰イオン（酸素イオン）とCTSと呼ばれる光学的に活性な状態を形成する元素としてYbを含有するYb混晶酸化物単結晶からなるシンチレータ用発光材料である。

また、本発明は、 $La_3R_2Ga_3O_{12}$ または $Gd_3R_2Ga_3O_{12}$ で表され、近接の陰イオン（酸素イオン）とCTSと呼ばれる光学的に活性な状態を形成する元素としてYbを含有するYb混晶酸化物単結晶からなるシンチレータ用発光材料である。

また、本発明は、前記RにおけるY、Gd、LuのいずれかとYbとのモル比が下記の条件を満たすことを特徴とする上記の発光材料である。

1.  $0.4x + 1.02y \leq 1.03$ ,  $x + y = 1$ ,  $0 < x < 1$ ,  $0 < y < 1$ （但し、 $x$ : Ybのモル比,  $y$ : Y, Gd, Luのいずれかのモル比）

#### 【0006】

上記の発光材料は、具体的には、下記のものである。

$(Y, Yb)_3Al_5O_{12}$ 、 $(Gd, Yb)_3Al_5O_{12}$ 、または $(Lu, Yb)_3Al_5O_{12}$ の群からなる化合物から選択されるアルミニウムガーネット単結晶。

$(Y, Yb)_3Ga_5O_{12}$ 、 $(Gd, Yb)_3Ga_5O_{12}$ 、 $(Lu, Yb)_3Ga_5O_{12}$ の群からなる化合物から選択されるガリウムガーネット単結晶。

$Li_6(Y, Yb)(BO_3)_3$ 、 $Li_6(Gd, Yb)(BO_3)_3$ 、または $Li_6((Lu, Yb)(BO_3)_3)$ の群からなる化合物から選択されるボレート単結晶。

#### 【0007】

$La_3(Y, Yb)_2Ga_3O_{12}$ 、 $La_3(Gd, Yb)_2Ga_3O_{12}$ 、 $La_3(Lu, Yb)_2Ga_3O_{12}$ の群からなる化合物から選択されるガリウムガーネット単結晶。

$Gd_3(Y, Yb)_2Ga_3O_{12}$ 、 $Gd_3(Gd, Yb)_2Ga_3O_{12}$ 、 $Gd_3(Lu, Yb)_2Ga_3O_{12}$ の群からなる化合物から選択されるガリウムガーネット単結晶。

#### 【0008】

#### 【発明の実施の形態】

本発明の発光材料の $(Y, Yb)_3Al_5O_{12}$ 、 $(Gd, Yb)_3Al_5O_{12}$ 、 $(Lu, Y$

$b)_3Al_5O_{12}$ 、 $(Y,Yb)_3Ga_5O_{12}$ 、 $(Gd,Yb)_3Ga_5O_{12}$ 、 $(Lu,Yb)_3Ga_5O_{12}$ 、 $La_3(Y,Yb)_2Ga_3O_{12}$ 、 $La_3(Gd,Yb)_2Ga_3O_{12}$ 、 $La_3(Lu,Yb)_2Ga_2O_{12}$ 、 $Gd_3(Y,Yb)_2Ga_3O_{12}$ 、 $Gd_3(Gd,Yb)_2Ga_3O_{12}$ 、 $Gd_3(Lu,Yb)_2Ga_2O_{12}$ 、 $Li_6(Y,Yb)(BO_3)_3$ 、 $Li_6(Gd,Yb)(BO_3)_3$ 、または $Li_6((Lu,Yb)(BO_3)_3)$ の群からなる化合物は、13族元素であるAl, Ga, またはBの酸化物であるガーネット単結晶またはボレート単結晶を母結晶とする。

## 【0009】

これらの化合物は、近接の陰イオン（酸素イオン）とCTSと呼ばれる光学的に活性な状態を形成する元素としてYbを含有している。

従来の技術に記載した特許文献に開示されるシンチレータ用発光材料の添加物であるCe, Nd, Pr, Crもしくはレーザー発光に用いられる添加物としてのYbでは、その核内で励起状態を形成する。

しかしながら、本発明の発光材料におけるYbのCTS（チャージトランスファーステート）からの発光の場合は、Ybの核内ではなく、YbとOの相互作用により形成されるCTSが励起状態であり、この状態からの発光となる。

## 【0010】

図1には、組成式： $\{c_3\} [a_2] (d_3) O_{12}$ で表される化合物における酸素の陽イオンへの配位の模式図を示す。 $R_3Al_5O_{12}$ 、 $R_3Ga_5O_{12}$ ではYbは12面体サイト(Dodecahedral-site)に入るが、 $La_3R_2Ga_3O_{12}$ または $Gd_3R_2Ga_3O_{12}$ ではYbは8面体サイト(Octahedral-site)に入り、12面体サイトにはLaおよびGdが入る。

## 【0011】

通常、希土類のサイトには最大で1ではなく、1.03程度まで入るので、前記RにおけるY, Gd, LuのいずれかとYbとのモル比は下記の条件を満たすようにする。発光効率は、 $0.10 < x < 0.20$ のときが最も高い。

$1.04x + 1.02y \leq 1.03$ ,  $x + y = 1$ ,  $0 < x < 1$ ,  $0 < y < 1$  (但し、 $x$ : Ybのモル比,  $y$ : Y, Gd, Luのいずれかのモル比)

## 【0012】

本発明の発光材料は下記のような単結晶製造法により製造できる。

[ $R_3Al_5O_{12}$ ガーネット]

出発原料としては、純度5N(99.999%)の酸化イットリウム( $Y_2O_3$ )、酸化ガドリニウム( $Gd_2O_3$ )、酸化イッテルビウム( $Yb_2O_3$ )、酸化ルテチウム( $Lu_2O_3$ )、酸化アルミニウム( $\alpha-Al_2O_3$ )を用いる。これらの出発原料を目的組成となるように秤量、混合した後、成型、焼成して発光材料の原料とする。

【0013】

単結晶成長は、高周波誘導加熱によるモディファイドマイクロ引下げ装置を用いて行う。マイクロ引下げ装置は、坩堝と、坩堝底部に設けた細孔から流出する融液に接触させる種を保持する種保持具と、種保持具を下方に移動させる移動機構と、該移動機構の移動速度制御装置と、坩堝を加熱する誘導加熱手段とを具備した一方向凝固成長装置である。

【0014】

該坩堝はイリジウム金属またはイリジウム合金坩堝であり、坩堝底部外周にイリジウム金属またはイリジウム合金からなる発熱体であるアフターヒータを配置する。坩堝及びアフターヒータは、誘導加熱手段の出力調整により発熱量の調整を可能とすることによって坩堝底部に設けた細孔から引き出される融液の固液境界相の加熱温度の制御を可能としている。

【0015】

この装置において、細孔を複数個設け、該細孔の径を実効偏析係数 $k_{eff}$ が約1になり、且つ、融液が垂れ落ちない大きさ（酸化物共晶体の場合、 $400\mu m\phi$ 以下、好ましくは $200\mu m\phi \sim 300\mu m\phi$ ）とし、かつ流下した融液が種結晶に接触する前に合流するように複数の細孔を配置する。

【0016】

この装置を用いて、上述の方法にて準備した成型、焼成済みの発光材料の原料を坩堝に入れ、炉内の雰囲気制御のため、真空排気した後、高純度Arガス(99.99%)を炉内に導入することにより、炉内を不活性ガス雰囲気とし、高周波誘導加熱コイルに高周波電力を徐々に印加することにより坩堝を加熱して、坩堝内の原料を完全に融解する。融液の組成の均一性を図る為、高周波出力を約2時



間保持することが望ましい。

#### 【0017】

続いて、次のような手順で結晶を成長させる。

種結晶 (<111>方位に切り出したYAGの単結晶) を所定の速度で徐々に上昇させて、その先端を坩堝下端の細孔 (流下した融液が種結晶に接触する前に合流するように複数の細孔を配置されている) に接触させて充分になじませたら、融液温度を調整しながら引下げ軸を下降させることで結晶を成長させる。準備した材料が全て結晶化し、融液が無くなった時点で結晶成長終了となる。当該結晶はアフターヒーター内に保持されたまま室温まで徐々に冷却される。

#### 【0018】

$R_3Ga_5O_{12}$ ,  $La_3R_2Ga_3O_{12}$ , または  $Gd_3R_2Ga_3O_{12}$  の単結晶成長の場合は以下のように行う。

出発原料としては、純度5N(99.999%)の酸化ランタン( $La_2O_3$ )、酸化イットリウム( $Y_2O_3$ )、酸化ガドリニウム( $Gd_2O_3$ )、酸化イッテルビウム( $Yb_2O_3$ )、酸化ルテチウム( $Lu_2O_3$ )、酸化ガリウム( $b-Ga_2O_3$ )を用いる。これらの出発原料を目的組成となるように秤量、混合した後、成型、焼成して発光材料の原料とする。

単結晶成長は、上記と同様に高周波誘導加熱によるモディファイド引下げ装置を用いて行う。但し、種結晶は<111>方位に切り出した $Y_3Ga_5O_{12}$ の単結晶を用いる。

#### 【0019】

[ $Li_6R(BO_3)_3$ ボレート]

$Li_6R(BO_3)_3$ の単結晶成長の場合は以下のように行う。

出発原料としては、純度5N(99.999%)の酸化ボロン( $B_2O_3$ )、炭酸リチウム( $Li_2CO_3$ )、酸化イットリウム( $Y_2O_3$ )、酸化ガドリニウム( $Gd_2O_3$ )、酸化イッテルビウム( $Yb_2O_3$ )、酸化ルテチウム( $Lu_2O_3$ )を用いる。これらの出発原料を目的組成となるように秤量、混合した後、成型、焼成して発光材料の原料とする。

単結晶成長は、上記と同様に高周波誘導加熱によるモディファイド引下げ装置を用いて行う。但し、種結晶は<010>方位に切り出した $Li_6Y(BO_3)_3$ の単結晶を用いる。

## 【0020】

以下に本発明の発光材料の特性について説明する。

## [濃度消光]

Yb(イッテルビウム)とO(酸素)間の電荷移動(チャージトランスファー)状態(Charge Transfer Status: CTS)からの発光では、濃度によるクエンチングがCeの5d-4f遷移のもの(1at%を超えると顕著なる)に比してシビアでない(40at%を超えると顕著になる)ため、高濃度での発光元素を用いて高輝度を得るという目的において優れている。

## 【0021】

## [偏析]

Ybは母結晶における代表的な希土類イオン(Y, Gd, Lu)と同程度の大きさであるため、偏析係数は1に近い。その結果、結晶作製の条件を最適化すれば、単結晶の作製方向の組成変動の無い単結晶を作製することは可能である。これも高精度を要求される次世代PET等に使用する際に大きな利点となる。

## 【0022】

## [発光波長]

本発明物質を用いたYbのチャージトランスファー状態からの発光の場合、発光波長が $\sim 540\text{ nm}$ とCeの5d-4f遷移のもの( $\sim 370\text{ nm}$ )に比して長波長であるため、ディテクターとして光電子増倍管よりも30 $\sim$ 40倍程度の分解能向上が見込まれる半導体フォトダイオードが、その最大感度波長( $540\text{ nm}$ )付近で使えることになる。

すなわち、本発明の材料を半導体フォトダイオードと組み合わせて用いることにより、高精度のシンチレータが現実のものとなり、それを用いたPETにおいて、分解能を0.1 mmサイズの病変領域が検知できるレベルに引き上げることにも可能となる。

## 【0023】

## [蛍光寿命(decay time)]

一般的に、チャージトランスファー状態からの発光では、蛍光寿命が遅いため、PETなどの高分解能用のシンチレータ結晶としては不向きとされていたが、

Ybのチャージトランスファー状態からの発光においては、室温では温度によるクエンチングのために蛍光寿命が短くなる。その分の発光ロスが発光元素の添加量を高濃度にできるという点でカバーができる。

【0024】

[放射線との衝突効率]

該結晶をはシンチレータ結晶として、 $\gamma$ 線、X線等の放射線を可視光に変換することを目的としている。 $\gamma$ 線、X線を効率良く吸収するためには密度が高いほど良いとされるが、YbはCeに比べて重い元素であるため、より多くの放射線を受け止める目的においても優れている。

【0025】

【実施例】

実施例1～3

表1に実施例1～3（番号1～3）のYb混晶アルミニウムガーネット単結晶の作製条件を示す。

【0026】

【表1】

番号	化合物組成	出発原料	融点,作製雰囲気, 坩堝材	最適 Yb 量
1	$\{Y_{3-x}Yb_x\}Al_5O_{12}$ x= 0.15 (5%) 0.30 (10%) 0.45 (15%) 0.60 (20%) 0.90 (30%)	$Y_2O_3$ (4N) $Yb_2O_3$ (4N) $Al_2O_3$ (5N)	1980°C Ar flow Ir 坩堝	$\{Y_{2.55}Yb_{0.45}\}Al_5O_{12}$ Yb=15%
2	$\{Gd_{3-x}Yb_x\}Al_5O_{12}$ x= 0.15 (5%) 0.30 (10%) 0.45 (15%) 0.60 (20%) 0.90 (30%)	$Gd_2O_3$ (4N) $Yb_2O_3$ (4N) $Al_2O_3$ (5N)	2000°C Ar flow Ir 坩堝	$\{Gd_{2.55}Yb_{0.45}\}Al_5O_{12}$ Yb=15%
3	$\{Lu_{3-x}Yb_x\}Al_5O_{12}$ x= 0.15 (5%) 0.30 (10%) 0.45 (15%) 0.60 (20%) 0.90 (30%)	$Lu_2O_3$ (4N) $Yb_2O_3$ (4N) $Al_2O_3$ (5N)	2050°C Ar flow Ir 坩堝	$\{Lu_{2.55}Yb_{0.45}\}Al_5O_{12}$ Yb=15%

【0027】

図2に、実施例3の $\{\text{Lu}_{2.55}\text{Yb}_{0.45}\}\text{Al}_5\text{O}_{12}$  (Yb=15at%)の単結晶の写真を示す。図3に、そのX線励起に対する発光スペクトルを示す。図4に、その蛍光寿命を示す。図3の発光スペクトルにより、特に右側のピークが半導体光ダイオードの最高感度波長域(530nm)に近いことが示されている。これにより、従来用いられているフォトマルチプライア(光電子増倍管)の30~40倍程度の感度を有する半導体光ダイオードをディテクターとして用いることができることが示されている。この感度の飛躍的向上はPETにおける分解能の向上に寄与する。

【0028】

## 実施例4~8

表2に実施例4~8(番号4~8)のYb混晶ガリウムガーネット単結晶の作製条件を示す。

【0029】

【表2】

番号	化合物組成	出発原料	融点,作製雰囲気, 坩堝材	最適 Yb 量
4	$\{\text{Y}_{3-x}\text{Yb}_x\}\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ x= 0.15 (5%) 0.30 (10%) 0.45 (15%) 0.60 (20%) 0.90 (30%)	$\text{Y}_2\text{O}_3$ (4N) $\text{Yb}_2\text{O}_3$ (4N) $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ (4N)	1750°C Ar+0.2%O <sub>2</sub> flow Ir 坩堝	$\{\text{Y}_{2.55}\text{Yb}_{0.45}\}\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ Yb=15%
5	$\{\text{Gd}_{3-x}\text{Yb}_x\}\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ x= 0.15 (5%) 0.30 (10%) 0.45 (15%) 0.60 (20%) 0.90 (30%)	$\text{Gd}_2\text{O}_3$ (4N) $\text{Yb}_2\text{O}_3$ (4N) $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ (4N)	1780°C Ar+0.2%O <sub>2</sub> flow Ir 坩堝	$\{\text{Gd}_{2.55}\text{Yb}_{0.45}\}\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ Yb=15%
6	$\{\text{Lu}_{3-x}\text{Yb}_x\}\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ x= 0.15 (5%) 0.30 (10%) 0.45 (15%) 0.60 (20%) 0.90 (30%)	$\text{Lu}_2\text{O}_3$ (4N) $\text{Yb}_2\text{O}_3$ (4N) $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ (4N)	1800°C Ar+0.2%O <sub>2</sub> flow Ir 坩堝	$\{\text{Lu}_{2.55}\text{Yb}_{0.45}\}\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ Yb=15%
7	$\{\text{La}_3\}\{\text{Lu}_{2-x}\text{Yb}_x\}(\text{Ga}_3)\text{O}_{12}$ x= 0.10 (5%) 0.20 (10%) 0.30 (15%) 0.40 (20%) 0.60 (30%)	$\text{La}_2\text{O}_3$ (4N) $\text{Lu}_2\text{O}_3$ (4N) $\text{Yb}_2\text{O}_3$ (4N) $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ (4N)	1800°C Ar+0.2%O <sub>2</sub> flow Ir 坩堝	$\{\text{La}_3\}\{\text{Lu}_{1.7}\text{Yb}_{0.3}\}(\text{Ga}_3)\text{O}_{12}$ Yb=15%
8	$\{\text{Gd}_3\}\{\text{Lu}_{2-x}\text{Yb}_x\}(\text{Ga}_3)\text{O}_{12}$ x= 0.10 (5%) 0.20 (10%) 0.30 (15%) 0.40 (20%) 0.60 (30%)	$\text{Gd}_2\text{O}_3$ (4N) $\text{Lu}_2\text{O}_3$ (4N) $\text{Yb}_2\text{O}_3$ (4N) $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ (4N)	1780°C Ar+0.2%O <sub>2</sub> flow Ir 坩堝	$\{\text{Gd}_3\}\{\text{Lu}_{1.7}\text{Yb}_{0.3}\}(\text{Ga}_3)\text{O}_{12}$ Yb=15%

## 【0030】

## 実施例9～11

表3に実施例9～11（番号9～11）のYb混晶ボレート単結晶の作製条件を示す。

## 【0031】

【表3】

番号	化合物組成	出発原料	融点,作製雰囲気, 坩堝材	最適 Yb 量
9	$\text{Li}_6(\text{Y}_{1-x}\text{Yb}_x)(\text{BO}_3)_3$ x= 0.05 (5%) 0.10 (10%) 0.15 (15%) 0.20 (20%) 0.30 (30%)	$\text{Li}_2\text{CO}_3$ (4N) $\text{Y}_2\text{O}_3$ (4N) $\text{Yb}_2\text{O}_3$ (4N) $\text{B}_2\text{O}_3$ (4N)	1780°C 80% $\text{N}_2$ +20% $\text{O}_2$ flow Pt 坩堝	$\text{Li}_6(\text{Y}_{0.85}\text{Yb}_{0.15})(\text{BO}_3)_3$ Yb=15%
10	$\text{Li}_6(\text{Gd}_{1-x}\text{Yb}_x)(\text{BO}_3)_3$ x= 0.05 (5%) 0.10 (10%) 0.15 (15%) 0.20 (20%) 0.30 (30%)	$\text{Li}_2\text{CO}_3$ (4N) $\text{Gd}_2\text{O}_3$ (4N) $\text{Yb}_2\text{O}_3$ (4N) $\text{B}_2\text{O}_3$ (4N)	1780°C 80% $\text{N}_2$ +20% $\text{O}_2$ flow Pt 坩堝	$\text{Li}_6(\text{Gd}_{0.85}\text{Yb}_{0.15})(\text{BO}_3)_3$ Yb=15%
11	$\text{Li}_6(\text{Lu}_{1-x}\text{Yb}_x)(\text{BO}_3)_3$ x= 0.05 (5%) 0.10 (10%) 0.15 (15%) 0.20 (20%) 0.30 (30%)	$\text{Li}_2\text{CO}_3$ (4N) $\text{Lu}_2\text{O}_3$ (4N) $\text{Yb}_2\text{O}_3$ (4N) $\text{B}_2\text{O}_3$ (4N)	1780°C 80% $\text{N}_2$ +20% $\text{O}_2$ flow Pt 坩堝	$\text{Li}_6(\text{Lu}_{0.85}\text{Yb}_{0.15})(\text{BO}_3)_3$ Yb=15%

## 【0032】

図5に、実施例9の $\text{Li}_6(\text{Y}_{1-x}\text{Yb}_x)(\text{BO}_3)_3$  (Yb=15at%)の単結晶の写真を示す。図6に、そのX線励起に対する発光スペクトルを示す。図5から蛍光寿命が30ns程度であることが分かる。これはCeを用いたGSO、LSO（10～80ns）とほぼ同程度の短さである。この蛍光寿命の短さもPETにおける分解能の向上に寄与する。

## 【図面の簡単な説明】

## 【図1】

図1は、組成式： $\{\text{c}_3\}[\text{a}_2](\text{d}_3)\text{O}_{12}$ で表される化合物における酸素の陽イオンへの配位を示す模式図である。

## 【図2】

図2は、実施例3の $(\text{Lu}_{2.55}\text{Yb}_{0.45})\text{Al}_5\text{O}_{12}$  (Yb=15at%)の単結晶

の透明性を示すための図面代用光学写真である。

【図 3】

図 3 は、実施例 3 の  $(\text{Lu}_{2.55}\text{Yb}_{0.45})\text{Al}_5\text{O}_{12}$  ( $\text{Yb}=15\text{at\%}$ ) の単結晶の X 線励起に対する発光スペクトルを示すグラフである。

【図 4】

図 4 は、実施例 3 の  $(\text{Lu}_{2.55}\text{Yb}_{0.45})\text{Al}_5\text{O}_{12}$  ( $\text{Yb}=15\text{at\%}$ ) の単結晶の蛍光寿命を示すグラフである。

【図 5】

図 5 は、実施例 9 の  $\text{Li}_6(\text{Y}_{1-x}\text{Yb}_x)(\text{BO}_3)_3$  ( $\text{Yb}=15\text{at\%}$ ) の単結晶の透明性を示すための図面代用光学写真である。

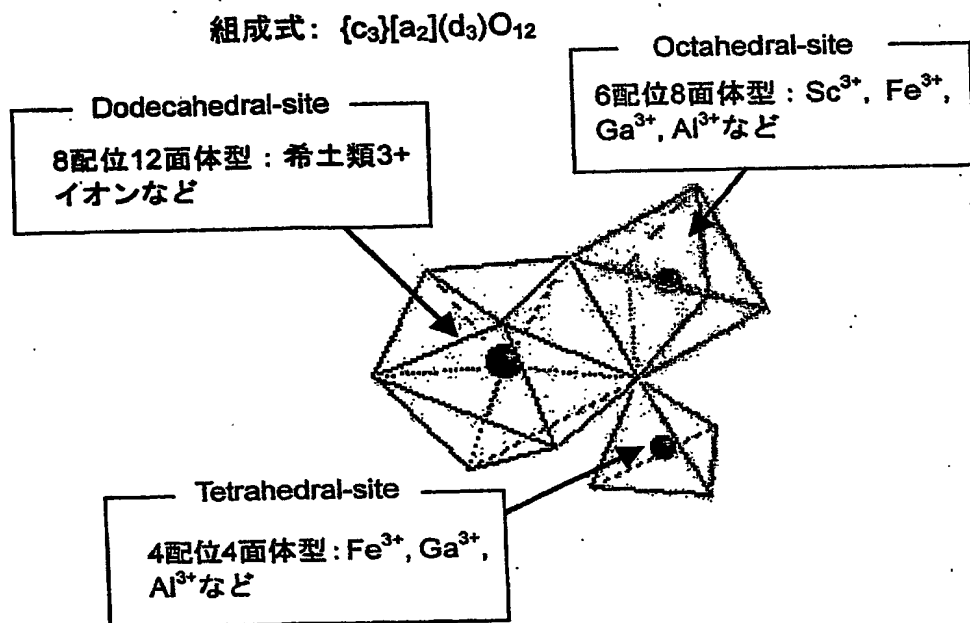
【図 6】

図 6 は、実施例 9 の  $\text{Li}_6(\text{Y}_{1-x}\text{Yb}_x)(\text{BO}_3)_3$  ( $\text{Yb}=15\text{at\%}$ ) の単結晶の X 線励起に対する発光スペクトルを示すグラフである。

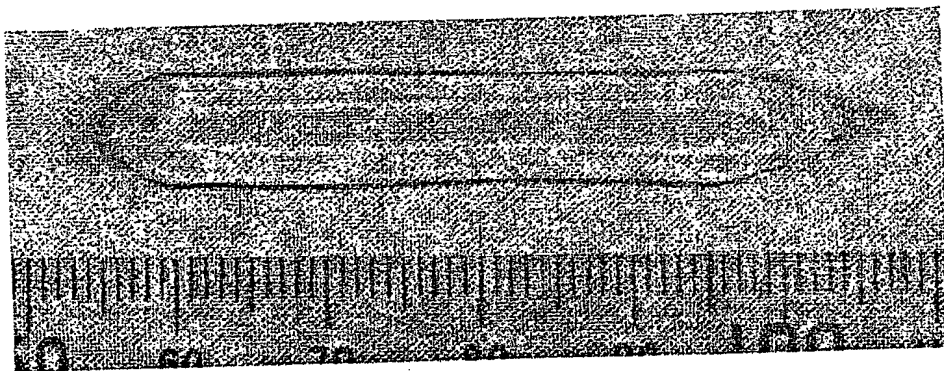
【書類名】

図面

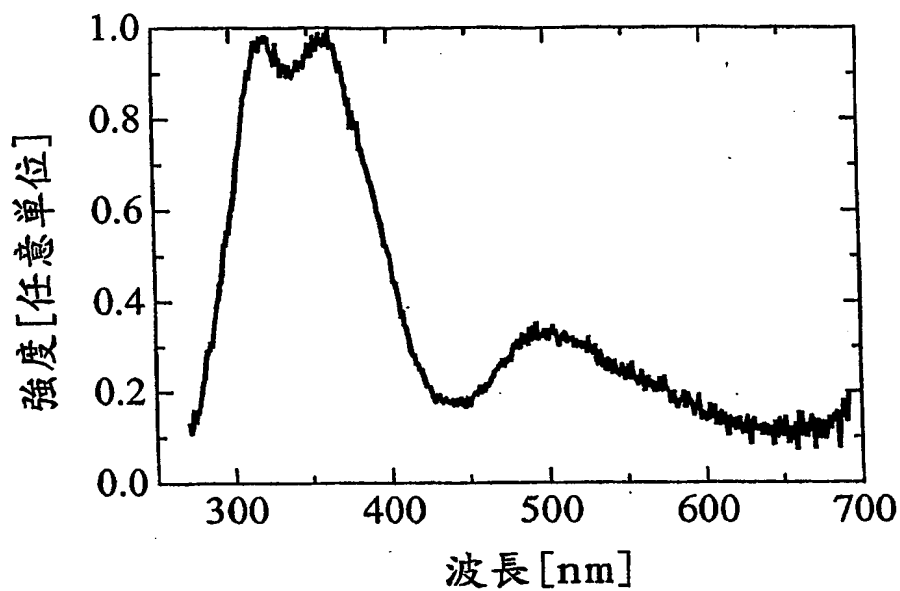
【図1】



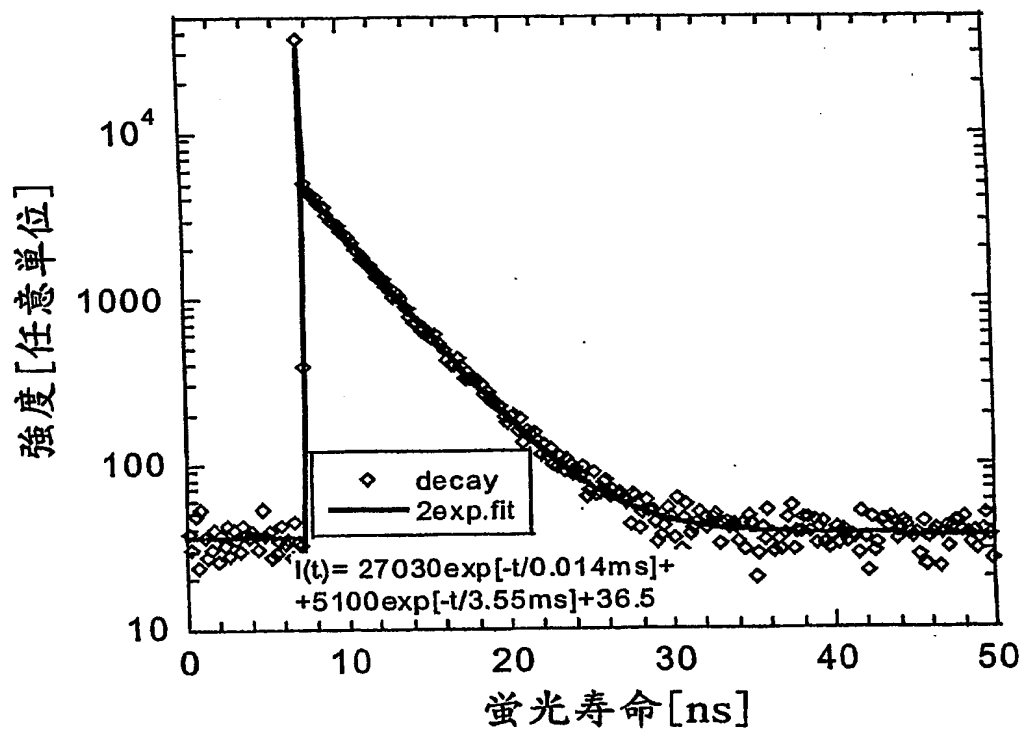
【図2】



【図 3】

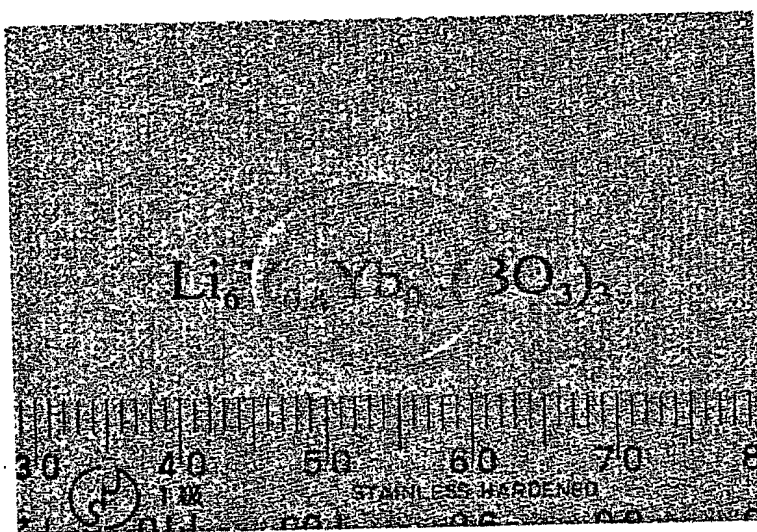


【図 4】

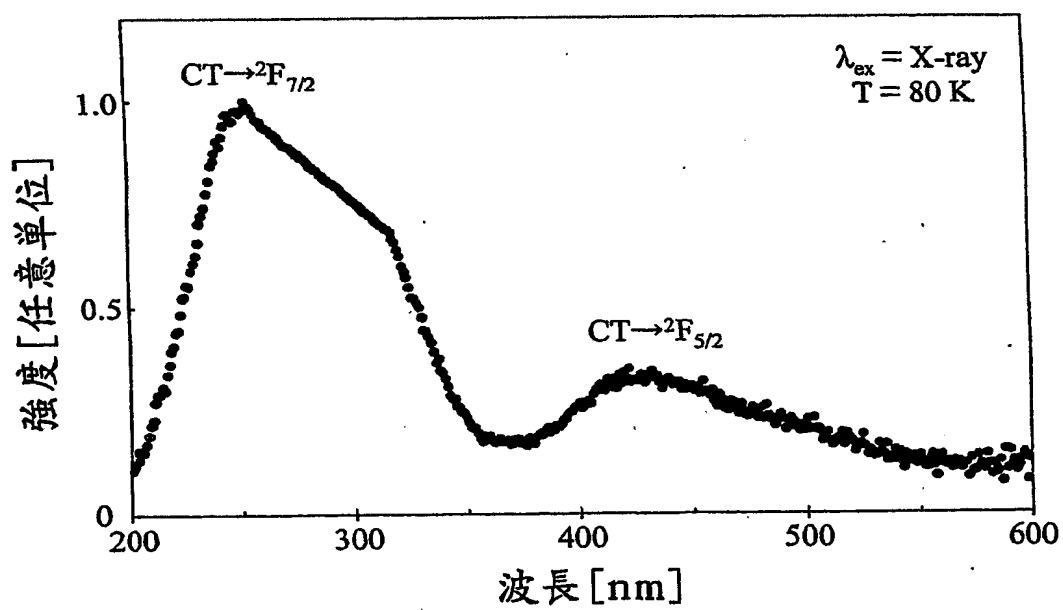




【図5】



【図6】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 シンチレータ用発光材料として使用されているものは、 $Ce:GSO$ 、 $Ce:LSO$ 、 $Ce:YAP$ 、に代表されるように、 $Ce$ の $5d-4f$ 遷移を用いたものであるが、濃度消光、偏析、発光波長、などに問題がある。

【構成】  $R_3Al_5O_{12}$ 、 $R_3Ga_5O_{12}$ 、 $Li_6R(BO_3)_3$ 、 $La_3R_2Ga_3O_{12}$ 、または $Gd_3R_2Ga_3O_{12}$ の組成（ $R$ は、 $Yb$ と $Y$ 、 $Gd$ 、 $Lu$ のいずれかとの混合物）で表され、近接の陰イオン（酸素イオン）とCTSと呼ばれる光学的に活性な状態を形成する元素として $Yb$ を含有する $Yb$ 混晶酸化物単結晶からなるシンチレータ用発光材料。

【選択図】 図4

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[396020800]

- |          |                 |
|----------|-----------------|
| 1. 変更年月日 | 1998年 2月24日     |
| [変更理由]   | 名称変更            |
| 住 所      | 埼玉県川口市本町4丁目1番8号 |
| 氏 名      | 科学技術振興事業団       |

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**